

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-298870

(43)Date of publication of application : 11.10.2002

---

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

C08G 73/22

C08G 75/32

H01M 8/10

---

(21)Application number : 2001-100907

(71)Applicant : TOYOBO CO LTD

(22)Date of filing : 30.03.2001

(72)Inventor : KITAMURA KOTA  
TAGUCHI HIROAKI  
SAKAGUCHI YOSHIMITSU

---

(54) SOLID POLYMER ELECTROLYTIC FILM/ELECTRODE JOINT BODY FOR FUEL CELL, AND MANUFACTURING METHOD THEREFOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a solid polymer electrolytic film/electrode joint body of superior conductivity and heat resistance, minimized in the load to environments in disposal by reducing the fluorine content, and usable for a solid polymer fuel cell, and to provide a manufacturing method thereof. SOLUTION: In this solid polymer electrolytic film/electrode joint body, formed of a solid polymer electrolytic film and electrode catalyst layers bonded to both sides thereof, the solid polymer electrolytic film and/or the electrode contain an ionic group-containing polybenzoxazole or ionic group-containing polybenzothiazole.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 04.07.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3632843

[Date of registration] 07.01.2005

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]



これらの中で、(k) ~ (p)の基が、耐熱性、機械特性、プロトン伝導性の面から好ましく、中でも(k)、(m)、(p)がさらに好ましく、(k)又は(k)が最も好ましい。 $A^+$ は、これらの基にZで表されるイオン性基を1個以上有していることが必要である。

【0021】Zがスルホン酸であるときプロトン伝導性の面で好ましい。Zは遊離の酸であることが、プロトン伝導性の面から好ましいが、一部又は全部がNa, K, Li, Mg, Ca, Ba, Feなどの金属やアミンなどの塩基性化合物と塩を形成してもよい。pは1~10の整数であり、1もしくは2であることが好ましい。

【0022】XはO、S原子を表す。XがN原子であるポリベンズイミダゾールは塩基性が大きいので、プロトン伝導性の面で好ましくない。

【0023】 nは1~10000の、mは0~1000の整数である。n,mの合計は2~20000の範囲であり、より好ましいは20~20000の範囲である。nに対するmのはできるだけ小さいことが、プロトン伝導性の面から好ましく、0~0.5の範囲であることが好ましく、0.2以下であることがさらに好ましく、0であることが最も好ましい。また、ポリマー中のイオン性の量は、1 kg当たり0.1モル以上の好ましく、0.5モル以上であることが好ましく、1.5モル以上であることが好ましく、0.1モル未満であることが、プロトン伝導性を著しく低下してしまい、また、0モルを超えるとう溶性が大幅に大きくなるため好ましくない。

【0024】ポリマー分岐量は、非増粘定量法や、光散法、減速沉降法、ガリヤ分配コログラフィ法、粘度測定法など知の様々な方法で行うことができる。中でも粘度測定法が容易に行えるため適している。本発明における該イオン性基含有ポリペンゼン系キチンアルまたはポリペンゼンキチンアル、メタンスルホン酸を原料とする濃度 0.05 g/dl の溶液を、25℃で水浴恒温槽型粘度計を用いて測定したときの粘度が 0.01 ~ 50 d1/g の範囲で定めるとことが好ましい。0.01 d1/g 未満だと、充分な粘度の増や増性を得ることができず、50 d1/g を越えると、ポリマー増粘の粘度が著しく上昇し加工性が悪化するため、それぞれ好ましくない。

【0025】本発明のイオン性基含有ポリペンゼンオキサゾール及びイオン性基含有ポリペンゼンアゾール化合物は、公知の任意の方法で合成することができ、特に限定されないものではないが、例えば (A) ビス (アゾフェノール) 化合物、ビス (アゾノチベン) 化合物、アゾノジクロキシベンゼン、アミジメジカルブト化合物などのアミノ基 (及びその誘導体) とそのオルト位にヒドロキシ基 (及びその誘導体) 又はカルボキシ基 (及びその誘導体) を有する芳香族化合物と、(B) ジカルボキシ化合物又はアミド、エステル化合物、ジシア

化合物、ジトリクロロメチル化合物とを、ポリリン酸、スルホン酸等/重合剤として重合せしめて得られた反応生成物である。有機酸塩やポリ(トリクロキシメチル)もしくはポリ(トリクロキシメチル)をいったん合成しおいて、脱水炭化して得るとしてもよい。オゾン系を導入する場合には、オゾン化を有する化合物あるいはオゾン酸を用いてもよい。アミノ基を有するモノマーが化合物に導入される。後述のように、アミノ基はモノマーに導入してもよい。アミノ基（及びその誘導体）とそのオゾン化に由来するドロキシ基（及びその誘導体）又はメチルカルブ（及びその誘導体）を有する芳香族化合物としては、上記（a）～（j）で表される残基に、アミノ基（及びその誘導体）とそのオゾン化に由来するドロキシ基（及びその誘導体）又はメチルカルブ（及びその誘導体）が結合した化合物を挙げることができる。誘導体としては、炭化アミド、(チオ)エステル、炭素原子が炭素原子1～6の炭化水素で置換したまたは以下に示すような化合物を挙げることができるがこれらに限定されるわけではない。

[10026] 1, 6-ジアミレゾルシンアルコール, 2, 5-ジアミルハイドロキノン, 4, 6-ジアミノ-2, 5-ジメチルトルゾルシンアルコール, 2, 5-ジアミノ-3, 6-ジメチルトルゾルシンアルコール, 2, 5-ジアミノ-1, 4-ベンゼンジチオール, 4, 6-ジアミノ-1, 3-ベンゼンジチオール, 2, 5-ジアミノ-3, 6-ジメチルアルコール, 4-ベンゼンジチオール, 4, 6-ジアミノ-2, 5-ジメチルアルコール, 1, 3-ベンゼンジチオール, 2, 6-ジアミノ-3, 7-ジヒドロキシフトアレチン, 2, 7-ジアミノ-3, 8-ジヒドロキシフトアレチン, 2, 6-ジアミノ-3, 7-ジメチルカプトフトアレチン, 2, 7-ジアミノ-3, 8-ジメチルカプトフトアレチン, 3'-ジヒドロキシベンジジン, 3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジヒドロキシフトアレチン, 3, 3'-ジメチルカプトベンジジン, 3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジメチルカプトフトアレチン, ビス (4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル) エーテル, ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) エーテル, ビス (4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル) スルフィド, ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) スルフィド, ビス (4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル) スルフィド, ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) スルフィド, ビス (4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル) メタン, ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) メタン, ビス (4-アミノ-3-メチルカプトフェニル) メタン, ビス (3-アミノ-4-メチルカプトフェニル) メタン, ビス (4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル) スルホン, ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) スル

ホシ、ビス (4-アミノノルホシ、ビス (3-アミノノルホシ)、2、2-ビスフェニル) プロパン、2、ヒドロキシフェニル) プロミン-3-メルクアトフェニル (3-アミノ-4-メルカト-2、2-ビス (4-アミノヘキサフルオロプロパン、4-ヒドロキシフェニル) 4-メルカトフェニル) ヘキサフルオロプロパン、3、3'-ジアミノ-4、エノ、4、4'-ジアミノベンゾフェノ、3、3'メルカトベンゾフェノ、3'-ジメルカトベンゾ-3-ヒドロキシフェノキミ-4-ヒドロキシフェノ-3-アミノ-4-メルカトビス (3、4、-ジアミノ好ましく、これらの化合物のこれらの化合物の値を使用、4、6-ジアミノノルホシイドロキシン、4、6-ジノルホシノール、2、5-ジイドロキシン、2、5-ジアノール、4、6-ジアミノ-2、5-ジアミノベンゼンジチオール、4、アール、1、3-ベンゼンジ物の塩酸又はリン酸塩が[0027] ジカルボン酸、エステル化合物、ジシテル) 化合物としては、上残基、-COOH基、(Xはハロゲン原子を表すOR基 (Rは、Hもしくは表す)、-CN基より選ばれることができる。また、塩基性ホスホン酸基およびを挙げることができる。[0028] イオン性基を以下に化合物を挙げることされるわけではない。テレ、4、4'-ビフェニルジカルニルジカルボン酸、2、2

[illegible]

(ニル) スルホン、ビス  
スルホン、ビス (4-カル  
キス (3-カルキスフェニ  
カルキスフェニルソフェ  
ニル) フェニン、2、2-  
ヘキサメタオロポル  
キスフェニル) ヘキサ  
ニル (4-カルキスフェニ  
3-カルキスフェニル)  
4-カルキスフェニル  
ルキスフェニル) スル  
ルキスフェニル) スル  
ニル) スルホン、2、6-  
ニル) フタリジナルカル  
2、6、7、8、9、10、11、  
ニル) 1-6のアルキル  
イドのニルヘリナ  
のりワリシナノ基有  
できます。これらの化合物  
、この中で好ましい化  
3-フェニルフェニル  
フェニル) スルホン  
フェニル) スルホン  
イオキシド、4'-フェニ  
イオキシドを有する化  
物の用途に1~10が  
適用されてもよい。こ  
2、5-カルキスフェ  
ニル) フタリジナルカル  
ニル) フェニル、スル  
ニル、4-スルホニ  
4-スルホニル  
ニル) フェニル、スル  
ニル) スルホン、4、6  
ニル) ジシズカルボン、など  
ニル、3、3'-ジスルホ  
ニル、2、2'-ジス  
ニル) スルホン、など  
ニル) フェニルカル  
ニル) フェニル) スル  
ニル) スルフェニル) ス  
3-スルフェニル) ス  
ニル) スルフェニル  
ニル) フェニル、3、3'-  
ニル) スルフェニル、2-  
ニル) フェニル (4-カル  
ニル) ビス (4-カルキ  
ニル) 2、2'-ウービ

11

4—カルボキシ—3—スルホベンゼン)へキサルフォロブレン、1, 5—ジスルホ—2, 6—ナフタレングルカルボン酸、2—スルホ—1, 4—ナフタレングルカルボン酸、4, 8—ジスルホ—2, 6—ナフタレングルカルボン酸、4, 8—ジスルホ—2, 6—ナフタレングルカルボン酸—6—ホスホ—4, 1—ナフタレングルカルボン酸、及びこれらのグルカルン酸の誘導体を調製することができる。これらの化合物は2—スルホカルブアラミン、2, 5—ジスルホカルブアラミン、3, 3—ジスルホ—4, 4'—ビフェニルジスルホカルボン酸である。これらの化合物のカルボキシ基は、アスド、炭酸塩、これらのモノあるいはこれらのアルキル塩、炭酸塩—1—6のアルキル又はエチルエステル、酪クロライドなどの鹽化ナイドなどの誘導体や、カルボキシ基の代わりにシアノ基を有する化合物などに転換されている。また、スルホ—ベンゼンやホスホ—ベンゼンなどのイオン性基は、Na, K, Li, M, Ge, Cs, Ba, Fe, Al, Ti, Cu, Znなどの金属や、脂肪族や芳香族のアミンなど—酸又は塩基と錯体を形成している。また、これらの化合物は分子内あるいは分子間で無水物や形成している。

[0029] 本発明の固体系分子電解質膜/電極化合物は、固体系分子電解質膜がイオン性基を含むポリベンジオキソアルコールあるいはポリベンジオールを含んでいること、及び/または電極層が酸イオン性基を含むポリベンズオキソアルコールあるいはポリベンジオールを含んでいることが特徴である。より好ましいことは固体系分子電解質が酸ポリマーを主成分とし、かつ電極層にも酸ポリマーが含まれていることが好ましい。また、酸ポリマーが固体系分子電解質膜と電極層とのバインダーとして存在していることも、バインダーとして使用する場合の対数好度、0.1〜30 d l/g の範囲にあることがより好ましい。

【1030】 固体高分子電解質と関連しては、デュポン社の「ナフイオン（登録商標）」、ダウケミカル社の「ダウ膜」、旭化成の「フミオン（登録商膜）」、ゴアテック製の「ゴアセレクト（登録商膜）」、ゴアテック社の「ゴアセレクト（登録商膜）」などの既存のフルフローカーボンスルホン酸系の高分子電解質や、スルホ化ポリエーテルスルホンやスルホ化ポリマーエーテルクトン、リン酸塩などの強酸性基を含有したポリベンゾイミダゾール、及び前記のポリベンゾイミダゾール系オキセチラール又はリベンゾチラールからなる高分子電解質と異なる高分子電解質膜を使用することができるプロトン伝導性がよく損失のない範囲で、これらの高分子電解質膜を含有した高分子電解質膜を用いること

特報 2002-298870  
12

しては、ポリペンジオキサソール又はポリペンジチアゾールが、イオン性基含有ポリペンジオキサソール又はポリペンジチアゾールとの相溶性に優れたもの好ましい。高分子溶解質媒は、各種高分子溶解質媒を、溶剤に溶解してキャストした後乾燥しては貴金属に侵襲して腐食を除去し、溶剤や貴金属の熱曝露を減小し、押し出しによる成型など、公知の工程の方法によって得ることができる。高分子溶解質媒の厚みは5~100  $\mu\text{m}$  であることが好しく、より好ましくは5~100  $\mu\text{m}$  の範囲である。

[0031] 本発明のイオン性基含有ポリペンジオキサゾール又はポリペンジチアゾールについては溶剤に溶解して成型することが好ましい。適する溶媒としては、ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジエチルホルムアミド、ジエチルセラムド、ヘキサチアホルムスルホンなどの非プロトン性極性溶媒や、塩化アルミニウム、塩化リチウム、臭化リチウムなどのハル素酸を添加したニトロソタン、ニトロベンゼンなどのニトロ化合物や、ポリリン酸、硫酸、メタンスルホン酸、エタンスルホン酸、クロロスルホン酸、トリフルオロ酢酸などの塩酸などから選んで、これらの溶媒は、特に黒色着色及ばない範囲で効果を合して使用してもよく、中でもジメチルセトミドなどの非プロトン性極性溶媒が好ましい。非プロトン性極性溶媒は、ポリマーの溶解性と溶液安定性を向上させるために、塩化アルミニウム、塩化リチウム、臭化リチウムなどのハル素酸を添加してもよい。また、酸イオン性基含有ポリペンジオキサゾール又はポリペンジチアゾールのスルホン酸基の含有量が多いと非プロトン性極性溶媒への溶解性が高まるので好ましい。

100321 本邦内の固体高分子電解質/電解液複合体は、高分子電解質に硫酸金属と結晶水とをキレートプレスした、市販のガラス放電電池に前記のイオン伝導率の高いポリバネオキソアセリウム又はポリバネオアソールをほじめとする高分子電解質を充填した1)を配布したところをば渡さることも前記の高分子電解質をばんでるば合した1)とせることができた。また、テフロン(登録商標)、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエチレンテフレートなどの非脂肪性高分子、前記の高分子電解質と塩とを溶液に均一に分散したペーストを市販の乾電池の通り道として用いることも、塩層を形成して高分子電解質をばんでるば合した1)とせることもできた。また、前記の高分子電解質と塩とを溶液に均一に分散したペーストを、銅箔、亜鉛、アルミニウム、噴霧、印刷などによって高分子電解質にばんでるば合を乾電池として使うこともできた。また、このペーストでカーボンペーストなどの電極材をばんでる

ことをしてもよい。高分子基含有ポリベンゾオキサゾールを用いる場合は、前記の。溶液あるいはペースト0.1~10重量%であるタングなどによって高分することできる。

〔0033〕触媒は触媒基材料からなり、その他の成分は白金を主成分とする貴金属、金、銀、イリジウムを含んでいてもよい。触媒であることが好ましい。高は50~10000%の範囲他の成分としては、辞書材料、テトラフルオロエアルビニルエーテル、ポリマーヘキサフルオロエチレン。

〔0034〕ホットプレスして適当な条件を選ぶ。00~300℃、プレス圧

加剤

t 1 : ポリマー溶液の落下  
t 2 : 溶液の落下秒数 (秒)  
c : 溶液濃度 (g/dl)

〔0039〕(イオン性基を0.01NのNaOH水℃で一晩攪拌した。その後イ

【0040】(耐熱性評価)  
TGA-50を用いて、約  
を、アルゴン雰囲気下で1  
速、10℃/分の速度で昇  
降の交差点の温度を熱重量  
【0041】(固体高分子  
トン伝導性測定)25℃  
内に3日間保持した固体高  
分子が完全に接触するように  
導電率  
= 厚  
【0042】(固体高分子  
1)ガラス製セラパラフ  
ゾルシノール塩酸塩(略  
(35.00mmol)  
号: STA 8.917g

(8)

質として前記のイオン性  
はがリグゼンチンアゾ  
ニ使用することができ  
る。完全分電解質の濃度は  
が好ましい。またスバク  
質に直接触媒を混合  
し、電解質を維持した導電性  
な膜においてもよい。金、銅、  
銀、ロジウム、パラジ  
ウムなどの他の金属  
10  $1 \sim 50 \text{ nm}$  の範囲  
で電解質に対する触媒の  
濃度が好ましい。その  
中で、特にテトラフルオロエ  
ン、ヘキサフルオロアルキ  
ル、テトラフルオロエチレン  
などが挙げられ  
る。使用する材料によ  
20 るが、ブレンス濃度は  
 $1 \sim 10 \text{ MPa}$  の範囲で  
 $(d)/g = \{1/n(t/\tau_o)\} / c$  数式  
(1) 濃度  $c$  と中和度  $n$ 、中和度  
は定置定置 COMET  
性基量は下記数式 (2)  
で算出される。結合した  
性基量の算出として求めた。

※製作所製熱重量分析機のサンプル量より、 $20 \pm 0.1$  分間にて炭化温度を決定した。重量変化は炭化温度と、  
重合体/電極接合体のプロ  
ンSEの電阻値の電極接合  
を、電解質膜/電極接合  
を白金板ではんだ状※40  
( $\text{cm}$ )  
※40/膜の抵抗値 ( $\Omega$ )/電極面積 ( $\text{cm}^2$ ) 放式  
439 g (秤量した、重量%)  
20℃で3時間、130℃  
2時間、190℃で15時間  
スで加熱する。ドロップ  
スで得られた。アイソイ

002-298870

分析値より、重量変化率と温度として評価せられた固体高分子電解質は、炭化触媒線筒とで構成された膜において、炭素高分子含有基を含むポリベンゾイミダゾール系ポリマーの導入量を増やすことにより、導電性に優れ、かつ腐食時間型材料電池用の電解液に適用できる。

以下に具体的に説明する限定されることとならない。

乾燥したポリマーをメノールに溶かし、その溶液を25℃以下に冷却してなることで固化した。

平均分子量株式会社製（80）を用いた。イオン交換容量は、イオン交換樹脂で処理し、イオ

(2) 測定した。65 KHz のスイミングダンスを SO  
SEQUENCY RES  
により測定した。結果を  
外挿することにより、  
超解質膜/電極接合体の  
より固体高分子超解質  
した。

4. 根据下列条件，求下列函数的解析式：

明和曆 1. 2. 3. 4. 5. 6. 7. 8. 9. 10. 11. 12. 13. 14. 15. 16. 17. 18. 19. 20. 21. 22. 23. 24. 25. 26. 27. 28. 29. 30. 31. 32. 33. 34. 35. 36. 37. 38. 39. 40. 41. 42. 43. 44. 45. 46. 47. 48. 49. 50. 51. 52. 53. 54. 55. 56. 57. 58. 59. 60. 61. 62. 63. 64. 65. 66. 67. 68. 69. 70. 71. 72. 73. 74. 75. 76. 77. 78. 79. 80. 81. 82. 83. 84. 85. 86. 87. 88. 89. 90. 91. 92. 93. 94. 95. 96. 97. 98. 99. 100. 101. 102. 103. 104. 105. 106. 107. 108. 109. 110. 111. 112. 113. 114. 115. 116. 117. 118. 119. 120. 121. 122. 123. 124. 125. 126. 127. 128. 129. 130. 131. 132. 133. 134. 135. 136. 137. 138. 139. 140. 141. 142. 143. 144. 145. 146. 147. 148. 149. 150. 151. 152. 153. 154. 155. 156. 157. 158. 159. 160. 161. 162. 163. 164. 165. 166. 167. 168. 169. 170. 171. 172. 173. 174. 175. 176. 177. 178. 179. 180. 181. 182. 183. 184. 185. 186. 187. 188. 189. 190. 191. 192. 193. 194. 195. 196. 197. 198. 199. 200. 201. 202. 203. 204. 205. 206. 207. 208. 209. 210. 211. 212. 213. 214. 215. 216. 217. 218. 219. 220. 221. 222. 223. 224. 225. 226. 227. 228. 229. 230. 231. 232. 233. 234. 235. 236. 237. 238. 239. 240. 241. 242. 243. 244. 245. 246. 247. 248. 249. 250. 251. 252. 253. 254. 255. 256. 257. 258. 259. 260. 261. 262. 263. 264. 265. 266. 267. 268. 269. 270. 271. 272. 273. 274. 275. 276. 277. 278. 279. 280. 281. 282. 283. 284. 285. 286. 287. 288. 289. 290. 291. 292. 293. 294. 295. 296. 297. 298. 299. 300. 301. 302. 303. 304. 305. 306. 307. 308. 309. 310. 311. 312. 313. 314. 315. 316. 317. 318. 319. 320. 321. 322. 323. 324. 325. 326. 327. 328. 329. 330. 331. 332. 333. 334. 335. 336. 337. 338. 339. 340. 341. 342. 343. 344. 345. 346. 347. 348. 349. 350. 351. 352. 353. 354. 355. 356. 357. 358. 359. 360. 361. 362. 363. 364. 365. 366. 367. 368. 369. 370. 371. 372. 373. 374. 375. 376. 377. 378. 379. 380. 381. 382. 383. 384. 385. 386. 387. 388. 389. 390. 391. 392. 393. 394. 395. 396. 397. 398. 399. 400. 401. 402. 403. 404. 405. 406. 407. 408. 409. 410. 411. 412. 413. 414. 415. 416. 417. 418. 419. 420. 421. 422. 423. 424. 425. 426. 427. 428. 429. 430. 431. 432. 433. 434. 435. 436. 437. 438. 439. 440. 441. 442. 443. 444. 445. 446. 447. 448. 449. 450. 451. 452. 453. 454. 455. 456. 457. 458. 459. 460. 461. 462. 463. 464. 465. 466. 467. 468. 469. 470. 471. 472. 473. 474. 475. 476. 477. 478. 479. 480. 481. 482. 483. 484. 485. 486. 487. 488. 489. 490. 491. 492. 493. 494. 495. 496. 497. 498. 499. 500. 501. 502. 503. 504. 505. 506. 507. 508. 509. 510. 511. 512. 513. 514. 515. 516. 517. 518. 519. 520. 521. 522. 523. 524. 525. 526. 527. 528. 529. 530. 531. 532. 533. 534. 535. 536. 537. 538. 539. 540. 541. 542. 543. 544. 545. 546. 547. 548. 549. 550. 551. 552. 553. 554. 555. 556. 557. 558. 559. 560. 561. 562. 563. 564. 565. 566. 567. 568. 569. 570. 571. 572. 573. 574. 575. 576. 577. 578. 579. 580. 581. 582. 583. 584. 585. 586. 587. 588. 589. 590. 591. 592. 593. 594. 595. 596. 597. 598. 599. 600. 601. 602. 603. 604. 605. 606. 607. 608. 609. 610. 611. 612. 613. 614. 615. 616. 617. 618. 619. 620. 621. 622. 623. 624. 625. 626. 627. 628. 629. 630. 631. 632. 633. 634. 635. 636. 637. 638. 639. 640. 641. 642. 643. 644. 645. 646. 647. 648. 649. 650. 651. 652. 653. 654. 655. 656. 657. 658. 659. 660. 661. 662. 663. 664. 665. 666. 667. 668. 669. 670. 671. 672. 673. 674. 675. 676. 677. 678. 679. 680. 681. 682. 683. 684. 685. 686. 687. 688. 689. 690. 691. 692. 693. 694. 695. 696. 697. 698. 699. 700. 701. 702. 703. 704. 705. 706. 707. 708. 709. 710. 711. 712. 713. 714. 715. 716. 717. 718. 719. 720. 721. 722. 723. 724. 725. 726. 727. 728. 729. 730. 731. 732. 733. 734. 735. 736. 737. 738. 739. 740. 741. 742. 743. 744. 745. 746. 747. 748. 749. 750. 751. 752. 753. 754. 755. 756. 757. 758. 759. 760. 761. 762. 763. 764. 765. 766. 767. 768. 769. 770. 771. 772. 773. 774. 775. 776. 777. 778. 779. 780. 781. 782. 783. 784. 785. 786. 787. 788. 789. 790. 791. 792. 793. 794. 795. 796. 797. 798. 799. 800. 801. 802. 803. 804. 805. 806. 807. 808. 809. 810. 811. 812. 813. 814. 815. 816. 817. 818. 819. 820. 821. 822. 823. 824. 825. 826. 827. 828. 829. 830. 831. 832. 833. 834. 835. 836. 837. 838. 839. 840

$$A \cdot A^T = 67 = -11,234$$

(附) (歌集・口口戸)

● 九龍半島

